



TITLE:

高温超伝導結晶のスピンの相関(基研短期研究計画『層状複合化合物の秩序化と乱れ-層間化合物,超伝導化合物,量子反強磁性体-』,研究会報告)

AUTHOR(S):

遠藤, 康夫

CITATION:

遠藤, 康夫. 高温超伝導結晶のスピンの相関(基研短期研究計画『層状複合化合物の秩序化と乱れ-層間化合物,超伝導化合物,量子反強磁性体-』,研究会報告). 物性研究 1989, 53(3): 294-298

ISSUE DATE:

1989-12-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/93914>

RIGHT:

高温超伝導結晶のスピンの相関

遠藤康夫（東北大理）

§ 1 序

酸化物超伝導の発現機構をめぐる最近の研究の方向はますます混迷の度を加えてきて、焦点が定まらないようだ。そのうちにあつて、中性子散乱実験は研究熱の始まった一昨年以來、コンスタントに重要な役割を果たしている。その一つの理由は、重金属元素酸化物中の酸素の原子位置や化学当量値等のパラメーターの決定が物質の同定には欠かすことが出来ない。中性子回折はこの目的にかなった理想的実験方法である。¹⁾

第二は高温超伝導酸化物の大半の物質は CuO_2 が積み重なった結晶構造をしている。その CuO_2 面にある正方結晶場に置かれた Cu 原子の d 電子殻は強い電子相関によって各々一つの正孔を持つ。従つて、正孔のスピン ($S=1/2$) が CuO_2 面内でお互いに反強磁性的に結合していると予想されていたが、まさにその予想通りに二次元反強磁性構造が中性子散乱によって証明された。²⁾

酸素の位置、濃度、銅イオンのスピンの磁気相互作用は電荷の注入量と共に超伝導発現に極めて重要な要因であることが実験的にもつきとめられていて、今後このような原因が超伝導発現をどのようにして生み出すのかを解明しなければならないところまでたどりついている。

この研究の進展は過去に行われたどの研究よりも急テンポに展開しているので、印刷の時期にはまた、新しい発展があるかもしれない。次節に La_2CuO_4 、第3節に $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ を取り上げる。

§ 2 La_2CuO_4 のスピン相関⁴⁾

La_2CuO_4 は約300Kにネール点を持つ反強磁性体である。ネール点は酸素の化学当量値と関わりを持っているので、結晶によって200~300Kまで100度以上差があることがわかっている。

さて、この物質は CuO_2 面内に強い反強磁性相互作用が働いていて、二次元反強磁性を示し、しかも Cu^{2+} と近似できる程度にd電子は電子相関効果によって絶縁体となっているのでスピン値は 1/2でいわゆる量子効果が強いものと思われる。ネール点 (T_N) 以上の高温で二次元反強磁性短距離秩序状態が中性子散乱で見ることが出来たのが、そもそもこの研究の始まりとなったが、 La_2CuO_4 では目下スピン励起を測っている。

$$S(\mathbf{Q}, \omega) = \int e^{-i\omega t} \langle S(\mathbf{Q}, 0) S(\mathbf{Q}, t) \rangle dt$$

熱中性子では、 ω の範囲は今のところ~12meV 程度までしか測れていないが、それでもかなり顕著に量子効果によると思われる影響が出ている。今のところ定量的に実験と比較できるのは Arovas, Averbach(AA) および⁵⁾ Tyc., Halperin, Chakraverty(THC)⁶⁾ 等の理論による計算が公表されているが、我々は具体的にTHCと比較を試みた。図のように ω の限られた領域ではあるがネール点以上の $S(\mathbf{Q}, \omega)$ の発散が止まるので、結果的に散乱強度のエネルギー変化が小さくなる。AAでも同様の傾向が出ていて、これらの結果は量子効果の入らないスピン系のネール点近傍の $S(\mathbf{Q}, \omega)$ が $T-T_N$ のべき乗で発散する事実と非常に顕著な対照をなす。最近グルノーブルのHot Sourceを使って La_2CuO_4 の高エネルギー励起が測られて約~50meV以上反強磁性相関の強い磁気励起スペクトルが得られているようだ。⁷⁾

La_2CuO_4 のスピン励起の特徴、すなわち量子効果について、かいつまんでまとめると次のようになる。多くの理論が合意しているように、強い電子相関のためにd電子が局在し、かつ反強磁性的な原子間相互作用が CuO_2 面内で強い。従って、 La_2CuO_4 の反強性を二次元 $S=1/2$ 、ハイゼンベルグ反強磁性体と近似してしまう事ができる。この近似モデルでは CHN理論⁸⁾ がいうように $T=0$ でネール状態 (LR0) が存在するらしい⁴⁾ ので、量子効果は Anderson が予言したようなRVB状態は少なくとも La_2CuO_4 では存在しないと結論している。

さて、量子効果はむしろ $S(\mathbf{Q}, \omega)$ に顕われていて、上に述べたように \mathbf{Q} 外周 (100) 付近に集約しているが、 ω は広がっている。例を上げてみると、 ω - \mathbf{Q} 空間でスペクトルを描くと、古典的な二次元反強磁性体では、スピン波散乱はちょうどアイスクリームの入れ物である、とんがり帽子のコーンを想像してもらえば良い。中性子散乱強度はコーンの殻にのみ集中しているが、

量子系の場合はその内にアイスクリームを詰めたようになっていて、散乱強度はアイスクリームの中身にも見いだされる。その上、温度変化も極めて弱い。ということは、有限温度におけるスピン励起の統計は古典的スピンのそれ、すなわちボース統計とは根本的に違うであろう。

§ 3 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ のスピン相関⁹⁾

$\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ の超伝導結晶 ($T_c \sim 32\text{K}$) におけるスピン相関も観測され¹⁰⁾、この物質ではCuのスピンは超伝導状態でも二次元反強磁性相関が強いことが確かめられた。 $\text{La}_{1.88}\text{Sr}_{0.12}\text{CuO}_4$ の結晶 ($T_c \sim 15\text{K}$) で得られたように、非整合周期を持つ Q のところにピークを持つ非弾性スペクトルが確認され、超伝導を運ぶ電荷が反強磁性相関を変形させることが確認された。言い替えれば、Cuのスピンと電荷の運び手の持つスピンとの磁気相互作用が極めて強いことが示唆される。これが第一の特徴である。

その上、図のように超伝導の結合力に対応するエネルギー以下のスピン励起の温度変化が顕著に変わることがわかった。(図2) これについてももう少し詳しく説明しよう。

この図は中性子散乱強度を散乱が見える Q の範囲で $\omega = 6\text{meV}$ と 12meV について積分した量を温度に対してグラフに書いてみたものである。

6meV の散乱強度は低温で顕著に小さくなり、減少する。しかし、 12meV のそれは温度変化しない。この図をつくる源は、 T_c ($\sim 33\text{K}$) 以下で ω を変えながら、 Q スキャンを行った $S(Q, \omega)$ の図が、Sr濃度のより稀い試料とは全く逆に低エネルギー側で強度が減少する事実をつかんだことに端を発している。 La_2CuO_4 の $S(Q, \omega)$ を一言で言及したとき、 ω について極めて鈍感ではあるが、 ω が大きくなると $S(Q, \omega)$ が一応は減少するような結果とは逆の傾向が超伝導を示す物質で初めて観測された。

しかもこの減少を示すエネルギーThresholdが $\sim 10\text{meV}$ 位で約 $3kT_c$ と見積もられ、ひょっとして超伝導を担う準粒子対を形成するエネルギーと関係がありはしないかという期待もないわけではない。

しかしながら、この大きいエネルギー値以下でスピン波にギャップが仮にあったとしても、そのエネルギーギャップ以下で散乱強度が残っているのは本質的なものかどうか、未だ実験的にも詰める必要がある。

ここでは詳しく述べていないが、 $S(Q, \omega)$ の散乱関数は Q に対して二つの山が出き、しかも構造は Q が非共約数 (Incommensurate) で山をつくる事など、不可思議な事は何等解決されていな

い。果たして、この事実がSDWの形成をも意味するのか、これも興味深い事実ではある。

§ 4 展望

以上、最近の高温超伝導体、主として $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ のスピンの研究を紹介した。大雑把ではあるが、我々の寄与は、 CuO_2 面内のスピン相関が極めて量子効果を取り込んでいることを証明したことである。このスピン相関と超伝導の担い手となる電荷が運ぶスピンとの間に、強く磁気相互作用が超伝導発現の起因であるという仮説、つまり広い意味でBCSと同じ相互作用が磁気的なものであるという仮説が何処まで成り立つのか、まだまだ挑戦が必要である。現在で $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ¹¹⁾や $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ 系も含めて実験中であり、いつかまた話をする機会もあらうと思っている。

参考文献

- 1) 遠藤康夫 パリティ 2, NO.7 48(1987)
渡辺 昇 パリティ 3, NO.2(1988)
- 2) G. Shirane et al., Phys. Rev. Lett. 59, 1613(1987)
遠藤康夫 日本物理学会誌 43, 372(1988)
- 3) 遠藤康夫 応用物理 58, 706(1989)
- 4) K. Yamada et al., Phys. Rev. B40, 4557(1989)
Y. Endoh et al., Phys. Rev. B37, 7443(1988)
- 5) D. P. Arovas and A. Averbach, Phys. Rev. Lett. 60, 1330(1988)
- 6) S. Tyc, B. I. Halperin and S. Chakravarty, Phys. Rev. Lett. 62, 835(1989)
- 7) G. Aeppli et al., Phys. Rev. Lett., 62, 2052(1989)
- 8) S. Chakravarty, B.I. Halperin and D. R. Nelson, Phys.Rev. B39,2344(1988)
- 9) T. R. Thurston et al., Phys. Rev. B40, 4585(1989)
- 10) G. Shirane et al., Phys. Rev. Lett. 63, 330(1989)
- 11) Y. Endoh et al., Phys. Rev. B40, 7023(1989)

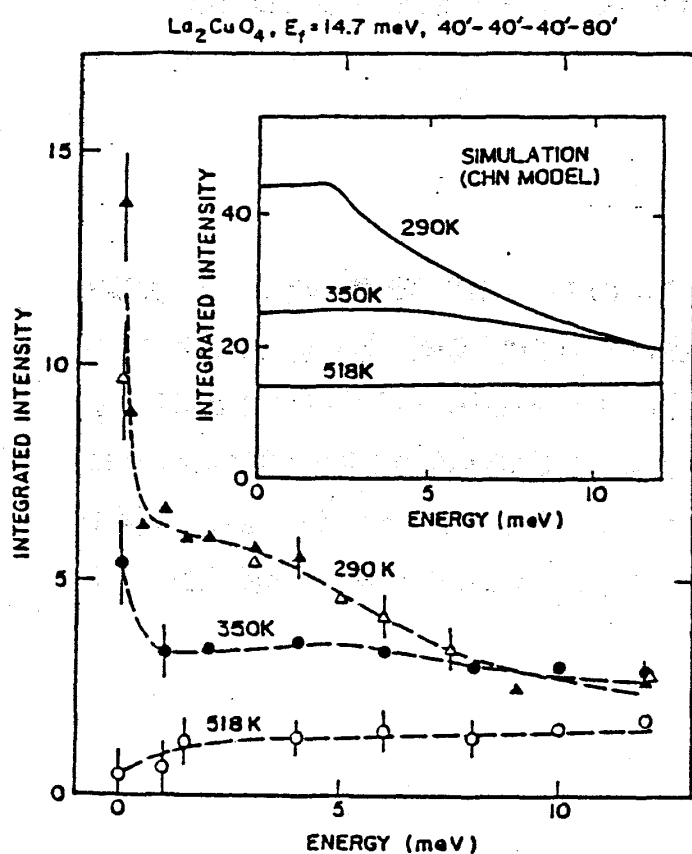


図1 La_2CuO_4 の三つの代表的な温度 ($T_N \sim 250\text{K}$) でのエネルギー・スキャンの強度変化の様子をプロットしたもの。図の中の挿入部分はTHC理論計算を元にシミュレーションした結果を示す。

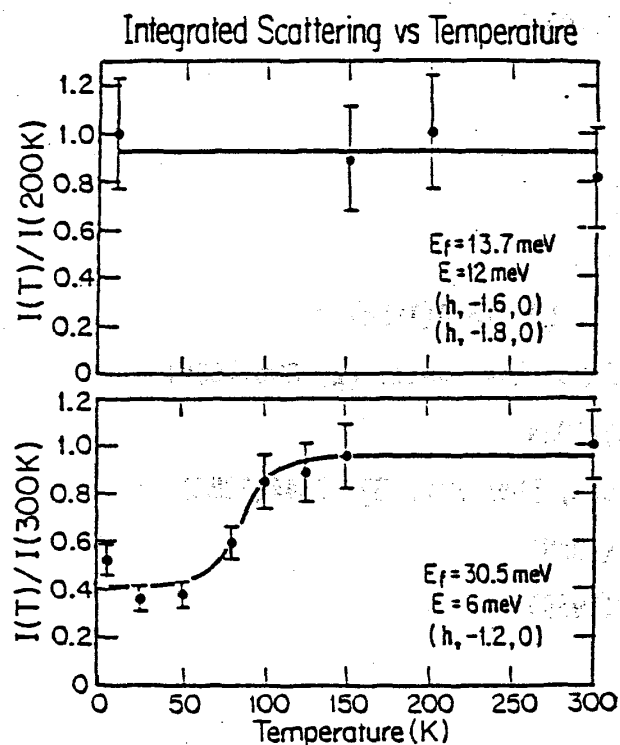


図2 $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ ($T_C \sim 32\text{K}$) の6meV、12meVの励起エネルギーを持つスピンの揺動による磁気散乱強度の温度変化。6meVが約100K以上で強度が激減することに注意。